

REC'D 24 MAR 2005

WIPO

PCT

特許性に関する国際予備報告 (特許協力条約第二章)

(法第12条、法施行規則第56条)

[PCT 36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 HM-F348PCT	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO3/15664	国際出願日 (日.月.年) 08.12.2003	優先日 (日.月.年) 06.12.2002
国際特許分類 (IPC) Int. Cl. C04B 35/195 H05K 3/46		
出願人 (氏名又は名称) 日立金属株式会社		

1. この報告書は、PCT 35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。  
法施行規則第57条 (PCT 36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 4 ページからなる。
3. この報告には次の附属物件も添付されている。
- a ☒ 附属書類は全部で 4 ページである。
- ☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙 (PCT規則70.16及び実施細則第607号参照)
- ☐ 第I欄4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙
- b ☐ 電子媒体は全部で \_\_\_\_\_ (電子媒体の種類、数を示す)。  
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第802号参照)

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- ☒ 第I欄 国際予備審査報告の基礎
- ☐ 第II欄 優先権
- ☐ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- ☐ 第IV欄 発明の単一性の欠如
- ☒ 第V欄 PCT 35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- ☐ 第VI欄 ある種の引用文献
- ☒ 第VII欄 国際出願の不備
- ☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 11.06.2004	国際予備審査報告を作成した日 02.03.2005	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 大橋 賢一	4T 8825
電話番号 03-3581-1101 内線 6791		

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2004年1月)

## 第I欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

- ☐ この報告は、                     語による翻訳文を基礎とした。  
それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

- ☐ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査  
☐ PCT規則12.4にいう国際公開  
☐ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

- ☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1-8, 11-19 ページ、出願時に提出されたもの

第 9, 10 ページ\*、27.09.2004 付で国際予備審査機関が受理したもの

第                      ページ\*、                     付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 3-5, 7-17 項、出願時に提出されたもの

第                      項\*、PCT19条の規定に基づき補正されたもの

第 1, 2, 6 項\*、27.09.2004 付で国際予備審査機関が受理したもの

第                      項\*、                     付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1-11 ページ/図、出願時に提出されたもの

第                      ページ/図\*、                     付で国際予備審査機関が受理したもの

第                      ページ/図\*、                     付で国際予備審査機関が受理したもの

- ☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☐ 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第                      ページ  
☐ 請求の範囲 第                      項  
☐ 図面 第                      ページ/図  
☐ 配列表 (具体的に記載すること)                       
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること)

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

- ☐ 明細書 第                      ページ  
☐ 請求の範囲 第                      項  
☐ 図面 第                      ページ/図  
☐ 配列表 (具体的に記載すること)                       
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること)

\* 4. に該当する場合、その用紙に“superseded”と記入されることがある。

## 第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	12	有 無
	請求の範囲	1-11, 13-17	
進歩性(IS)	請求の範囲	12	有 無
	請求の範囲	1-11, 13-17	
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1-17	有 無
	請求の範囲		

## 2. 文献及び説明(PCT規則70:7)

文献1: JP 2000-272960 A (日立金属株式会社) 2000.10.03

調査報告で引用する文献1には、組成や焼成条件において、本発明と一致する事例がある。

例えば、同文献記載の「試料No. 92」は、本発明実施例の「試料No. 13」や「試料No. 17」と同一の焼成条件であって、その組成(特に、Bi, Na量)が両者の中間的なものに相当する。

してみると、同文献には、本発明と同等の組織や強度をもつセラミック組成物が記載されていると認められる。

したがって、本発明(請求の範囲1-11, 13-17)は、文献1により、新規性・進歩性がないものと考えられる。

次に、Al, Si, Srの三成分のみからなり、本発明で特定する組織・強度をもつセラミック組成物について、これを記載ないし示唆する文献は見出せない。

したがって、本発明(請求の範囲12)は、新規性・進歩性があるものと考えられる。

## 第Ⅶ欄 国際出願の不備

この国際出願の形式又は内容について、次の不備を発見した。

- 1) 「基地が単斜晶」とする請求項5が、「基地がアモルファス」とする請求項3を引用しているのは誤りである。
- 2) 「チタン酸化物を主原料」とする請求項13が、Tiを含まない請求項10. 12を引用しているのは誤りである。
- 3) 本発明のセラミック組成物の成分組成に関する記載が整合していない。  
すなわち、請求項10-11や明細書第4頁で、主成分を100質量%とする数値限定をしているにもかかわらず、実施例1-4は何れも、主副全成分を100質量%とする数値限定となっている。
- 4) 表3「試料No. 18, 20」の「ピーク強度比」の記載と「含有する結晶相」の記載は整合していない。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)

請求の範囲

12

請求の範囲

1-11, 13-17

有  
無

進歩性(IS)

請求の範囲

12

請求の範囲

1-11, 13-17

有  
無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲

1-17

請求の範囲

有  
無

2. 文献及び説明(PCT規則70:7)

文献1: JP 2000-272960 A(日立金属株式会社) 2000.10.03

調査報告で引用する文献1には、組成や焼成条件において、本発明と一致する事例がある。

例えば、同文献記載の「試料No. 92」は、本発明実施例の「試料No. 13」や「試料No. 17」と同一の焼成条件であって、その組成(特に、Bi, Na量)が両者の中間的なものに相当する。

してみると、同文献には、本発明と同等の組織や強度をもつセラミック組成物が記載されていると認められる。  
したがって、本発明(請求の範囲1-11, 13-17)は、文献1により、新規性・進歩性がないものと考えられる。

次に、Al, Si, Srの三成分のみからなり、本発明で特定する組織・強度をもつセラミック組成物について、これを記載ないし示唆する文献は見出せない。  
したがって、本発明(請求の範囲12)は、新規性・進歩性があるものと考えられる。

第Ⅶ欄 国際出願の不備

この国際出願の形式又は内容について、次の不備を発見した。

- 1) 「基地が単斜晶」とする請求項5が、「基地がアモルファス」とする請求項3を引用しているのは誤りである。
- 2) 「チタン酸化物を主原料」とする請求項13が、Tiを含まない請求項10.12を引用しているのは誤りである。
- 3) 本発明のセラミック組成物の成分組成に関する記載が整合していない。  
すなわち、請求項10-11や明細書第4頁で、主成分を100質量%とする数値限定をしているにもかかわらず、実施例1-4は何れも、主副全成分を100質量%とする数値限定となっている。
- 4) 表3「試料No. 18, 20」の「ピーク強度比」の記載と「含有する結晶相」の記載は整合していない。

ーク強度比と抗折強度には相関関係があり、一般にピーク強度比が高くなるに従って抗折強度も高くなる。従って、50%以上のピーク強度比及び 300 MPa 以上の抗折強度を有するように焼成温度及び時間を調整するのが好ましく、60%以上のピーク強度比及び 400 MPa 以上の抗折強度を有するように焼成温度及び時間を調整するのがより好ましい。

最適な焼成温度及び時間は、一般に低温焼成セラミック組成物の組成に応じて異なる。従って、個々の低温焼成セラミック組成物に高いピーク強度比及び抗折強度を確実に付与するためには、その組成に応じて最適な焼成温度及び時間を実験的に求める必要がある。一般に、焼成温度は 1000°C 以下が好ましく、950°C 以下がより好ましく、900°C 以下が特に好ましい。また焼成時間は 2～4 時間程度が好ましい。

このような方法により得られる本発明の低温焼成セラミック組成物は、さらに 6～9 程度の比誘電率  $\epsilon$ 、及び実用的な 3000 GHz (3 THz) 以上の  $fQ$  ( $f$  は共振周波数) を有するのが好ましい。

本発明の積層電子部品は、上記低温焼成セラミック組成物からなる各誘電体層に低融点金属（銀、銅、金又はこれらの合金）からなる導体パターンを形成し、得られた導体パターンを有する誘電体層を複数積層することにより得られる。導体パターン自体は公知のもので良く、例えばインダクタンス素子及び／又はキャパシタンス素子を構成する。積層電子部品には、インダクタンス素子、キャパシタンス素子、スイッチング素子及びフィルタ素子の少なくとも 1 つを実装しても良い。積層電子部品の層構成自体は公知のもので良い。

本発明を以下の実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

## 実施例 1

SrAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> の化学量論的組成(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : 31.30 質量%、SiO<sub>2</sub> : 36.89 質量%、SrO : 31.81 質量%)となるように、純度 99.9%、平均粒径 0.5 μm の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末、純度 99.9%以上、平均粒径 0.5 μm 以下の SiO<sub>2</sub> 粉末、及び純度 99.9%、平均粒径 0.5 μm の SrCO<sub>3</sub> 粉末をポリエチレン製のボールミルポットに投入し、酸化ジルコニウム製のボールと純水を投入して、20 時間湿式混合を行った。得られたスラリーを加熱乾燥した後、ライカイ機で解砕した。得られた混合粉末をアルミナ製のるつぼに入れて、850℃で 2 時間仮焼して、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 結晶を含有するケイ酸塩系ガラス粉末とした。

この仮焼粉を上記ボールミルで 40 時間湿式粉碎した後、乾燥した。得られた乾燥仮焼粉の一部を純水と一緒にボールミルに投入し、平均粒径 1.0 μm に粉碎した。得られた粉碎粉を含有するスラリーに、ポリビニルアルコール (PVA) を粉碎粉 100 質量%に対して 1.5 質量%の割合で添加した後、スプレードライヤーで造粒・乾燥し、平均粒径が約 0.1 mm の顆粒状の造粒粉を得た。

造粒粉を 200 MPa の圧力で加圧成形し、円柱状成形体を得た。この成形体を大気中で室温から 950~1200℃の温度まで 200℃/hr の速度で加熱し、前記温度に 2 時間保持して焼成した後、室温まで 200℃/hr の速度で冷却した。得られた焼成体の比誘電率 ε を円柱共振器により 8~15 GHz の共振周波数で求めた。試料の結晶状態は、Cu-Kα 線による X 線回折により確認した。

上記と同様に作製した 38 mm×12 mm×1 mm の試験片に対して、支点間距離を 30 mm とし、荷重速度を 0.5 mm/min とし、3 点曲げ試験 (JIS C2141) を行い、試験片が破壊したときの最大荷重から曲げ強さ (抗折強度) を求めた。結果を表 1 に示す。またアルミナのデータも表 1 に併せて示す。

組織中の六方晶 SrAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> と単斜晶 SrAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> との比率として、両者の面回折強度の比率を求めた。面回折強度の比率は、Cu-Kα 線による X 線回折において 22.9° 付近に現れる六方晶 SrAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> の (101) 面のピーク強度 I<sub>101</sub> と、27.7° 付近に現れる単斜晶 SrAl<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>8</sub> の (002) 面のピーク強度 I<sub>002</sub> とから、I<sub>101</sub> / (I<sub>101</sub> + I<sub>002</sub>) x 100 の式により求められるピーク強度比により表される。結果を表 1 に示す。



## 請求の範囲

1. (補正後) 組織中に六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  及び  $\text{Al}_2\text{O}_3$  結晶を有し、300 MPa 以上の抗折強度を有することを特徴とする高強度低温焼成セラミック組成物。
2. (補正後)  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-SrO}$  を主体とする基地に六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  を含み、  
5 前記基地に  $\text{Al}_2\text{O}_3$  結晶粒を有し、300 MPa 以上の抗折強度を有することを特徴とする高強度低温焼成セラミック組成物。
3. 請求項 2 に記載の高強度低温焼成セラミック組成物において、前記基地がアモルファス相であり、前記アモルファス相に六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  が析出していることを特徴とする高強度低温焼成セラミック組成物。
- 10 4. 請求項 2 に記載の高強度低温焼成セラミック組成物において、前記基地が実質的に  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶からなり、その少なくとも一部が六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  であることを特徴とする高強度低温焼成セラミック組成物。
5. 請求項 2~4 のいずれかに記載の高強度低温焼成セラミック組成物において、前記基地が単斜晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  を含有することを特徴とする高強度低温焼  
15 成セラミック組成物。
6. (補正後) 組織中に  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶及び  $\text{Al}_2\text{O}_3$  結晶を有し、前記  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶は六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  単独又は六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  及び単斜晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  からなり、Cu-K $\alpha$ 線による X 線回折測定において、六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  の (101) 面のピーク強度を  $I_{101}$ 、単斜晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  の (002) 面のピーク強度を  $I_{002}$  とし  
20 たとき、 $I_{101} / (I_{101} + I_{002}) \times 100$  で表わされるピーク強度比が 5% 以上であり、もって 300 MPa 以上の抗折強度を有することを特徴とする高強度低温焼成セラミック組成物。
7. 請求項 6 に記載の高強度低温焼成セラミック組成物において、前記ピーク強度比が 50% 以上であることを特徴とする高強度低温焼成セラミック組成物。
- 25 8. 請求項 6 又は 7 に記載の高強度低温焼成セラミック組成物において、実質的に  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶からなる基地を有するとともに、前記基地に  $\text{Al}_2\text{O}_3$  結晶粒を有する組織を有し、前記  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶は六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  単独又は六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  及び単斜晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  からなり、前記  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶における前記六方晶  $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  の割合は 60% 以上であり、かつ 400 MPa 以上の抗折強

度を有することを特徴とする高強度低温焼成セラミック組成物。

9. 請求項 1～8 のいずれかに記載の高強度低温焼成セラミック組成物にお